## (9) 日本国特許庁 (JP)

⑪特許出願公開

## ⑫公開特許公報(A)

昭55-73045

	識別記号	庁内整理番号	❸公開 昭和55年(1980)6月2日
G 03 C 1/72		6791—2H	
G 03 F 7/08	103	7267—2H	発明の数 2
H 01 L 21/302		6741—5 F	審査請求 未請求
G 03 C 1/52			

(全 8 頁)

図感光性混合物及び該混合物を含有する複写材 料

②特 願 昭54-142141

②出 . 願 昭54(1979)11月5日

優先権主張 ②1978年11月4日③西ドイツ

(DE) @P2847878.6

⑦発 明 者 パウル・シュタールホーフエン ドイツ連邦共和国ヴィースパー デン・ヴアルター・ギーゼキング・シュトラーセ28

⑦出 願 人 ヘキスト・アクチェンゲゼルシャフト

. ドイツ連邦共和国フランクフルト・アム・マイン80

20

(1) 付 理 人 弁護士 ローランド・ゾンデルホフ 外1名

*ب* 

明細書

- 1 発明の名称 感光性混合物及び該混合物を含有する複写材
- 2 特許請求の範囲
  - a) 感光性化合物としての1,2-ナフトキノンジアジドスルホン酸又は1,2-ナフトキノンジアジドカルボン酸のエステル又はアミド、
    - b) アルカリ水溶液に可容の水不容性フェ ノール樹脂及び
    - .c) 少なくとも1個のフェノール性とドロキシ基を有する芳香族ケト化合物を含有する 感光性混合物において、芳香族ケト化合物がヒドロキシペンプフェノンとホルムアルデヒドとの縮合生成物であることを特徴とする、 飛光性混合物
  - 2. 縮合生成物が一般式(1):

 $\begin{array}{c|c}
R_2 & R_1 \\
R_1 & CO \\
R_4 & R_5
\end{array}$ 

〔式中、 R1、 R2、 R4 及び R5 はそれぞれ水 素原子を表わすか又は OH 蒸を表わし、 n は 1~10の数を表わす〕で示される総合生成 物に相当する、特許請求の範囲第1項記載の 感光性混合物

- 3. 縮合生成物を非揮発性成分の重量に対して 3~20重量%の量で含有する、特許請求の 範囲第1項配載の感光性混合物
- 4. ヒドロキンペンプフェノンが 1 分子中に少なくとも 2 個のヒドロキン基を含有する、特許請求の範囲第 1 項配載の感光性混合物
- 5. ヒドロキシペンプフェノンが2,3,4‐

(2)

(1)

トリヒドロキシ・ベンザフェノンである、特許球の範囲第4項記載の感光性混合物

- 6. 眉支持体と、
  - e) 感光性化合物として1,2-ナフトキノンジアジドスルホン酸又は1,2-ナフトキノンジアジドカルポン酸のエステル又はアミド、
  - b) アルカリ性水溶液に可溶の水不溶性フェノール樹脂及び
  - c) 少なくとも1個のフェノール性ヒドロキシ基を有する芳香族ケト化合物

を含有する感光層とからなる感光性複写材料 において、芳香族ケト化合物がヒドロキンベ ンプフェノンとホルムアルデヒドとの縮合生 成物であることを特徴とする感光性複写材料

3 発明の詳細な説明

本発明は、石版印刷板、複写ラツカ及び該類似物の製造に好適なポジ作業する感光性混合物に関する。

像に応じて露光された範囲が現像液に可容性

(3)

زتخ

明細苷に記載されているように、一定の複素環式化合物、例をは2・アザシクロプナン・2・オン、インドール、キナグリン及びテトラザールの添加によつて上昇させることができる。また、この分類系も上記した場合と同様の極端に狭い現像範囲を有するにすぎない。

特公昭 4 6 - 4 2 4 4 9 号には、写真感光度を上昇させるための種々の添加剤、例えばトリフエニルメタン染料、ペンズアルデヒド・ロートリルヒドラザン、ハロゲン化炭化水素及びアプ染料が記載されているが、これらの化合物は顕著な作用を有しない。

最後に、西ドイツ国特許公開公報第 2657922 号には、同じ目的に対する環式酸無水物の添加 剤が記載されている。また、この場合も、感光 変の明らかな上昇は現像抑制剤のコストに対し てのみ達成される。

従つて、本発明の課題は、○・ナフトキノン ジアジド化合物及びアルカリ可容性フェノール 樹脂を含有する感先性混合物の感光度を、この 特開照55-73045(2)

となり、露光されてない範囲が不裕である感光性混合物ないしはこの形式の複写材料は久しく公知である。この種の材料の製造に関しては実地においてなかんずく。・キノンジアジドを有する暦がなおアルカリ可裕化基を有する概光性化合物として使用される。

電子ピームに対するの・ナフトキノンジブジド膜の感光度は、米国特許第3661582号

.(4)

وستن

際他の重要な性質に不利に影響を与えるととな しに改善するととである。

本発明は、

- a) 感光性化合物としての 1 , 2 ナフトキ ノンジアジドスルホン酸又は 1 , 2 - ナフトキ ノンジアジドカルポン酸のエステル又はアミド、
- b) アルカリ性水溶液に可容の水不容性フェ ノール樹脂及び
- c) 少なくとも1個のフェノール性ヒドロキシ基を有する芳香族ケト化合物を含有する感光 性混合物から出発する。

本発明による混合物は、芳香族ケト化合物が ヒドロキシペンザフェノンとホルムアルデヒド との総合生成物であることを特徴とする。

西ドイツ国特許公開公報第2547905号には、ことに記載した種類の、特にポリヒドロキンペングフェノンを含有する感光性複写材料が記載されている。該化合物は、ホルムアルデヒドと紹合せず、支持体への届付着を改善するために添加される。これと関連して、感光度を

(6)

高めることは問題ではない。

本発明による混合物及びそれから形成された 複写層に含有される芳香族ケト化合物は、ペン ゲフェノン単位がメチレン架機によつて互いに 結合されている、ヒドロキンペングフェノー お合されている、ヒドロキシペングフェノー ないなアルデヒドとの重縮合生成物である。この場合、少なくとも1個のOR 基はカルポニル を有するC原子に隣接していなければならない。この優れた縮合生成物は、一般式(I):

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & & \\
R_1 & & \\
R_2 & & \\
R_3 & & \\
R_4 & & \\
R_5 & & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & & \\
R_2 & & \\
R_3 & & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
R_4 & & \\
R_5 & & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
R_4 & & \\
R_5 & & \\
\end{array}$$

で示すととができ、との場合 R<sub>1</sub> 、 R<sub>2</sub> 、 R<sub>4</sub> 及 び R<sub>5</sub> はそれぞれ水熟原子を装わすか又は OH

(7)

ν。

少なくとも 2 個の OR 基を 1 分子中に有する ヒドロキンペングフェノンが一般に優れている 前配ヒドロキンペングフェノンをホルムアル

デヒド水稻液(38重量多)と、一般にフェノール性化合物 1 モル当り 1~1.5 モルの食で、有利に酸性触媒の存在下に反応させる。この化合物を他の磁加剤なしにか又は有機溶剤中で互いに縮合させる。重縮合に対する有機溶剤としては、例をはメチルエチルケトン、テトラヒドロフラン及び殊に1,4・ジオキサンが好適である。

酸性触媒としては、例えば塩酸、蓚酸又は p
- トルオールスルホン酸が好適である。

重縮合するためには、反応混合物を若干の時間、例えば1時間70℃~100℃に加熱する。一般には縮合生成物は反応溶液から生じ、他の場合には比較的薄い液状混合物を提拌下に過剰低の氷水中に少しずつ流し込み、常法で後処理する。

特諾昭55-73045(3)

感を表わし、ロは1~10の数を表わす。

ベンナフェノン単位は、この製造から明らかなように場合によつては2つのメチレン架橋によって互いに結合していてもよい。

ホルムアルデヒドとの反応に好適なヒドロキシベンソフェノンは、フェノール核に少なくとも1つの自由なの・又はp位を有するものである。ホルムアルデヒドとの縮合後に添加剤として本発明による傷合物に特に好適であるヒドロキンベンソフェノンの例は、次のものである:

2 , 3 , 4 - トリヒドロキン - ペンナフエノ ン、

2,4-ジヒドロキシ・ペングフェノン、

2 , 4 , 6 - トリヒドロキシ - ペンザフエノン、

2 , 3 , 4 , 4' - テトラヒドロキシ - ペンプ フェノン、

2 , 2' , 4 , 4' - テトラヒドロキシーペング .フェノン、

2.4.4-トリヒドロキシ・ベングフェノ

(8)

フェノールホルムアルデヒド樹脂の製造と全く同様に実施される稲谷の場合、一般には塩 合生成物の重合体均質混合物が形成される。 合性核位優、すなわち OH 基に対する空の・ 又は P 位のみを有するフェノール性原料物質を 使用するならば、一般にメチレン基によりで 合した 2 つのヒドロキッペングフェノン単位を 有する純粋な反応生成物が形成される。

感光性混合物中のヒドロキシベングフェノン 稲合生成物の漫度は、比較的広範な範囲内を変 動することができる。この濃度は、該混合物な いしは複写層の全固体含量に対して一般に4~ 20重量多、有利に6~10重量多である。

(10)

特開昭55-73045(4)

項1 1 2 4 8 1 7 号明細督、同第 1 1 0 9 5 2 1 号明細督、同第 1 1 2 0 2 7 3 号明細督、同第 1 1 1 0 9 5 2 1 号明細督、同第 1 1 1 4 7 0 5 号明細督及び同第 15 4 3 7 2 1 号明細督ならびに先顧である西ドイツ国等と出顧明細智郎 P 2 7 4 2 6 3 1 号及び同葉 P 2 8 2 8 0 3 7 号に記載されている。該混合物中のナフトキノンジアジド化合物の量は、固体ないしは非揮発性成分の含量に対して一般に10~30重量多、有利に15~25重量多である。

本発明による混合物中に含有される感光性でない、水不容性の、膜形成する T ルカリ 可容性フェノール樹脂は、約300~5000の分子 景を有し、フェノール又は 置換フェノールるのをによつて 得られる。 適当な 置換フェノールは、クレザール、キシレクール、 プチルフェノール 及び 放類 似物 で エエール で 使れた 膜形成する T ルカリ 可容性フェノール が ラック、クレザール / ホルム T ルデヒド・ノ

• (11)

れたアルミニウム薄板、例えば機械的又は電気化学的に根面化されかつ場合によつては陽極酸化されたか又は化学的に予備処理されたアルミニウム薄板が好ましい。

感光性複写材料は、露光後に常法で、少量の有機形剤又は湿潤剤を含有していてもよいアルカリ性水溶液で現像される。との現像は、適当な処理器具中での浸渍、刷毛塗り、噴霧によつてかあるいは手での刷毛を用いる擦過によつて行なりことができる。

本発明によれば、公知のポジ作業する復写層 に対する明らかな感光度の上昇は、同時に類著 に復写技術及び印刷技術の欠点なしに達成され ポラック及びフェノール変性キンレノール/ホルムアルデヒド・ノポラックである。フェノール樹脂の量は、全ての非揮発性成分の約50~90重量を、有利に65~85重量をの範囲内である。

本発明による混合物は、自体公知の方法でなか充塡剤、染料、顔料、光分解性酸結合剤、例 をは1,2-ナフトキノン-(2)-4-スルホン 酸クロリド、及び他の常用の添加剤及び助剤を 含有することができる。

(12)

る、すなわち複写層の耐現像液性、階調、像の コントラスト又は印刷発行部数の低下は、甘受 する必要は <del>しを作ればなら</del>ない。

本発明を次の実施例につき詳説する。 例 1

2.3,4-トリヒドロキシーペングフエノン1モルとナフトキノン-(1,2)-ジアジド-(2)-5-スルホン酸クロリド3モルとからなるエステル化生成物 0.73重量部2,2'-ジヒドロキシージナフチル-(1,1')-メタン1モルとナフトキノン-(1,1')-ソアジド-(2)-5-スルホン酸クロリド2モルとからなるエステル化生成物

0.55重量部

DIN53181の毛管法による軟化点
105℃~120℃を有するクレザール・ホルムアルデヒド・ノボラック 5.33重量部ナフトキノン・(1,2)・ジアジド・(2)・4・スルホン酸クロリド 0.17重量部クリスタルパイオレット(カラーインデック

(14)

. . .

ス番号 4 2 5 5 5 5 ) 0.0 6 重量部 及び以下に記載した 2 , 3 , 4 - トリヒドロキシーペングフェノンとホルムアルデヒドとの縮合・生成物 0.6 8 重量部 を、

エチレングリコールモノメチルエーテル

4 0 重量音

テトラヒドロフラン 50重量部 及び 酢酸ブチル 10重量部 からなる俗剤合物に俗かす。

印刷版を製造するには、こうして得られた印 刷板を透明ポジの下方で露光し、公知方法で次 の密液:

メタ珪酸ナトリウム・9H<sub>2</sub>0 5.3 重量部 オルト燐酸三ナトリウム・1 2 H<sub>2</sub>0

3.4 重量部

(15)

像される印刷版を完全に優り蘇光時間は 4 4 秒である。従つて、感光度は、 2 . 3 . 4 - トリヒドロキシ - ペンゲフエノン/ホルムアルデヒド稲合生成物を復写層に添加することによつて約76 5 上昇させることができた。

本発明の他の題署な利点は、該総合生成物の 添加によつて印刷発行部数も、分離印刷の間の 印刷技術的挙動、例えば水流も、他の複写技術 的性質、例えば階調、像のコントラスト及びな かんずくアルカリ性現像液に対するステンシル の射触膜も、不利に影響を受けることがないこ とである。

ヒドロキンペングフェノングホルムアルデヒド 高合生成物の製造は、フェノールグホルムアルデヒド・ノボラツクの製造と同様に行なわれる。例1 で使用された 2 . 3 . 4 - トリヒドロキン・ペングフェノンとホルムアルデヒドとの低分子反応生成物は、過剰のホルムアルデヒド格液(38 重量を)中の 2 . 3 . 4 - トリヒドロキシ - ペングフェノンの格液を 1 n 塩酸の存

特開昭55-73045(5)

類 酸 二 水素 ナト リ ゥム ( 無 水 ) 0.3 重量部・水 9 1 重量部を用いて現像し、この場合鑑光した層範囲を除去する。こうして製造した印刷版によつてオフセット印刷機で約 1 5 0 0 0 0 枚の消足を印刷物を得ることができる。

前記のように製造した感光性石版印刷板を、 露光試験グレースケールの下で 5 0 0 0 0 W の金 属ハロゲン化物ランプを用いて 1 0 3 cmのラン プ距離で 2 5 秒間 離光した。 最適な 第光時間は、 ここで使用される 1 0 段階の網分解グレースケールが 放板を完全に 被う値として 和定された。 使用された 露光試験グレースケールの 濃度 は、 相前後してそれぞれ 0.1 5 の段階を 有している。 最高の 濃度値は、 第 1 3 段階で 1.9 5 である。

同じ印刷版を、但し2、3、4・トリヒドロキシ・ペンプフェノンとホルムアルデヒドとの、縮合生成物の添加なしに同じ暦厚及び同じ支持材料で、しかも同じ試験条件下に製造する場合、便用される10段階の翼光グレースケールが現

(16)

在下で80℃~100℃に加熱することによつ て比較的簡単に得られる。

メチレン架橋によつて互いに結合した2個のヒドロキシベンザフェノン基からなる紹合生成物は、比較的短時間後に反応溶液から純粋な形で生じる。メタノールから再結晶させると、該磁合生成物は223℃で溶験する。

次の実施例では、感光度の上昇に関して例 1 と同様の結果が得られる。判明した短時間の解 光時間は、それぞれヒドロキンペンプフェノン /ホルムアルデヒド縮合生成物の添加をしの相 当する複写層と比較して記載されている。

全ての比較実験は、それぞれ例1と同様の試験条件下で実施された。 絶対解光時間は、明らかにランプの型及びランプの距離に応じて変更可能である。また、次の各実施例の場合も例1と同様一番短かい露光時間にも拘らず印刷板の印刷技術的及び複写技術的欠点は確認されない。全ての実施例にかいて、少なくとも100000枚刷りの発行部数を得ることができる。

(18)

**6**10 2

ナフトキノン - (1,2) - ジアジド - (2) - 4 - スルホン酸の 4 - (α,α - ジメチル -ベンジル) - フェニルエステル

0.880重量部、

2 , 2 ′ - ジヒドロキシ - ジナフチル - (1, 1 ′ ) - メタン 1 モルとナフトキノン - ( 1 , 2 ) - ジアジド - ( 2 ) - 5 - スルホン酸クロ リド 2 モルとのエステル化生成物

0.437重量部、

例1に記載されたノポラツク

5.300重量部、

ナフトキノン・( 1 , 2)- ジアジド・( 2 )
- 4 - スルホン酸クロリド 0.2 0 0 重量部、
2 , 3 , 4 , 4′-テトラヒドロキシ・ペン
プフエノンとホルムアルデヒドとの重縮合生成
物 0.640 重量部及び
クリスタルバイオレツト 0.0 6 2 重量部

٠.

エチレングリコールモノメチルエーテル

(19)

- ジアジド・(2) - 5 - スルホン酸クロリド
2 モルとのエステル化生成物 1.4 0 重量部、例1 に記載されたノボラック 5.3 2 重量部、クリスタルバイオレット 0.0 6 重量部、ナフトキノン・(1,2) - ジアジド・(2)
- 4 - スルホン酸クロリド 0.1 8 重量部及び2、4、4′-トリヒドロキシ・ペンプフエノンとホルムアルデヒドとの重縮合生成物

0.5 6 重量部

を、

. エチレングリコールモノメチルエーテル

40重量部、

テトラヒドロフラン

50重量部及び

酢酸プチル

8.重量部

からなる格剤混合物に密かす。

この容液を用いて、電気化学的に粗面化されかつ陽極酸化されたアルミニウム薄板を被優する。

露光時間: 2 4 秒

ベンザフェノン/ホルムアルデヒド超合生成

(21)

--

特開昭55-73945(6) 4 0 重量部、

テトラヒドロフラン

酢酸プチル

4 0 重量部 及び

8重量部

からなる格剤混合物に俗かす。

この俗液を用いて、低気化学的に租面化されかつ陽極酸化されたアルミニウムシートを被優する。

簬光時間:29秒

ヒドロキシベンザフェノン/ホルムアルデヒ ド顧合生成物を添加しない場合、露光時間は 4 4 秒 である。

2.3.4.4′-テトラヒドロキシーベン プフエノンとホルムアルデヒドとの縮合生成物 は、例1の記載と同様にフエノール成分と過剰 のホルムアルデヒドとの反応によつて製造され る。該反応生成物は、種々の縮合度を有する同 族体の樹脂状混合物である。

例 3

2 , 4 - ジヒドロキシ - 3 , 5 - ジプロム -ペンザフエノン 1 モルとナフトキノン - (1,2)

(20)

物を添加しない場合露光時間は35秒である。 例 4

2 . 3 . 4 - トリヒドロキン - ペングフエノン 1 モルとナフトキノン - ( 1 . 2 ) - ジアジド - ( 2 ) - 5 - スルホン酸クロリド 2 モルとのエステル化生成物 1.2 6 重量部、

2,2'-ジヒドロキン-ジナフチル-(1,1')-メタン1モルとナフトキノン-(1,2)-ジアジド-(2)-5-スルホン酸クロリド2モルとのエステル化生成物

0.700重量部、

例1に記載されたノポラツク

4.9 0 5 重量部、

ス ダ ン エ ロ ー G G N ( カ ラ ー イ ン デ ツ ク ス 番 号 1 1 0 2 1 ) 0.0 5 5 重量部及び

2 , 4 - ジヒドロキシ・ペンザフエノンとホ ルムアルデヒドとの賃縮合生成物

0.600重量部

を、

エチレングリコールモノメチルエーテル

(22)

4 0 重量部、

テトラヒドロフラン 5 O 重量部 及び 酢酸プチル 8 重量部

からなる格剤混合物に裕かす。

この格 液を用いて、電気化学的に粗面化されかつ 隔極酸化された アルミニ ウムシートを被優する。

露光時間:21秒

ジェドロキシ - ベンザフェノン/ホルムアル デェド縮合生成物を添加しない場合露光時間は 35秒である。

例 5

- 2 . 3 . 4 - トリヒドロキシーペングフェノン 1 モルとナフトキノン - ( 1 , 2 ) - ジアジド - ( 2 ) - 5 - スルホン酸 クロリド 3 モルとのエステル化生成物 0.7 6 0 重量部、2 , 2 ′ - ジェドロキシージナフチル - (1, 1′) - メタン 1 モルとナフトキノン - ( 1 , 2 ) - ジアジド - ( 2 ) - 5 - スルホン酸 クロリド 2 モルとのエステル化生成物

(23)

この密液を用いて、電気化学的に粗面化され かつ陽極酸化されたアルミニウム薄板を被優す る。

露光時間: 23秒

**69**1 6

 2 , 4 - ジェドロキシーペングフェノン 1 モルとナフトキノン - ( 1 , 2 ) - ジェジドー( 2 ) - 5 - スルホン酸クロリド2 モルとのエステル化生成物

2 . 2′ - ジェドロキシ・ジナフチル・(1,1′) - メタン 1 モルとナフトキノン・(1,2) - ジアジド・(2) - 5 - スルホン酸クロリド 2 モルとのエステル化生成物

0.4 4 6 重量部、

例1に記載されたノポラツク

5.3 2 0 重量部、

クリスタルパイオレツト 0.0 6 1 重量部、

特配昭55--73045(7)

0.640重量部、

軟化点 1 1 2 ℃~ 1 1 8 ℃のフェノール/ホ ルムアルデヒド - ノポラツク(フェノール含有 量 1 4 重量 5 ) 4.7 5 0 重量 部、

ポリピニルブチラール 0.155 重量部、 スダンエロー G G N (カラーインデックス番 号 11021) 0.070 重量部、

クリスタルパイオレツト塩基

0.136重量部、

模酸・トリス・(2・クロル・エチル)・エステル 0.5 5 0 重量部及び 2、3、4・トリヒドロキン・ペングフエノンとホルムアルデヒドとの紹合生成物

0.690重量部

を、

エチレングリコールモノメチルエーテル

4 0 重量部、

テトラヒドロフラン

50重量部及び

酢酸プチル

D重量部

からなる格別混合物に俗かす。

(24)

ナフトキノン・(1,2)-ジTジド・(2)
- 4 - スルホン酸クロリド 0.199 重銀部及び
2,4,6-トリヒドロキシ・ベンザフエノ
ンとホルムアルデヒドとの重縮合生成物

を、

エチレングリコールモノメチルエーテル

4 0 重量部、

0.600重量部

テトラヒドロフラン . 50 重量部 及び 酢酸プチル 10 重重部

からなる俗剤混合物に溶かす。

この溶液を用いて、電気化学的に粗面化され かつ陽極酸化されたアルミニウム溶板を被**役**す る。

露光時間: 27秒

トリヒドロキシ - ベンザフェノン/ホルムアルデヒド結合生成物を添加しない場合には、 35秒の露光時間が得られる。

99 7

2.3.4-トリヒドロキシーペングフェノ

(26)

(25)

نيغة

特緊昭55-73045 (8)

酢酸プチル

8重量部

からなる溶剤混合物に溶かす。

との容液を用いて、針金プラシで機械的に粗 面化されたアルミニウムシートを被**復**する。

露光時間:20秒

トリヒドロキシ - ペンダフエノン/ホルムアルデヒド縮合生成物を添加しない場合、露光時間は37秒である。

代理人 弁護士 ローランド・ゲンデルホ

活着 7 有多

例1に記載されたノポラツク

リド2モルとのエステル化生成物

。 のエステル化生成物

5.4 4 重量部、

0.4 9 重量部、

0.871重量部、

スダンエロー G G N (カラーインデックス番・ 号 1 1 0 2 1 ) D.O 4 6 重量部、

ン 1 モルとナフトキノン - ( 1 , 2 ) - ツァツ

ド-(2)-5-スルホン酸クロリド2モルと

2 , 2′ - ジヒドロキシ - ジナフチル ~ (1, 1′) - メタン 1 モルとナフトキノン - ( 1 ,

2 ) - ジアジド - ( 2 ) - 5 - スルホン酸クロ

クリスタルパイオレツト 0.0 7 3 重量部及び 2 , 3 , 4 - トリヒドロキシ - ペンサフェノ ンとホルムアルデヒドとの縮合生成物

0.600重量部

を

エチレングリコールモノメチルエーテル

35重量部、

テトラヒドロフラン 45重量部 及び

(27)

(28)